

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 01-264904

(43)Date of publication of application : 23.10.1989

(51)Int.Cl.

C01B 3/38  
C10G 35/04  
// H01M 8/06

(21)Application number : 63-094084

(71)Applicant : KOBE STEEL LTD

(22)Date of filing : 15.04.1988

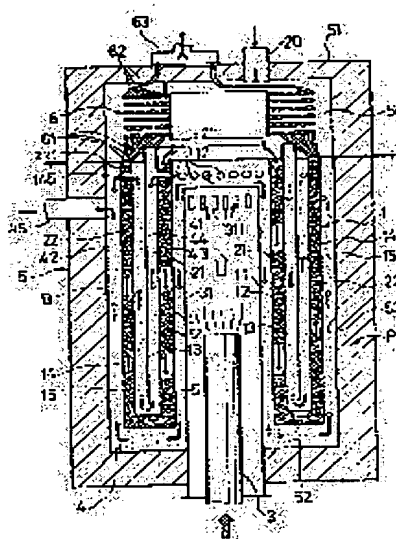
(72)Inventor : IMOTO YOSHIKI

## (54) APPARATUS FOR REFORMING HYDROCARBON

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To effectively utilize the heat of combustion gas and to make the whole apparatus compact by forming a reaction tube with coaxially arranged tubes, and heating the catalyst beds in the inner and outer passages of the reaction tube from both the inner and outer peripheries.

**CONSTITUTION:** A fuel such as methane and air are supplied to a burner 3 to generate combustion gas. The combustion gas is sent upward through the inside of a sleeve 31, and discharged to the upper end of a first passage 41 through penetrating holes 311. A part of the discharged combustion gas descends in the passage 41, reverses at the lower end, and is discharged from an outlet pipe 45 through a second passage 42. The residual combustion gas is passed through a communicating passage 112, and sent downward in a third passage 43, reversed at the lower end, sent upward in a fourth passage 44, and discharged from an outlet pipe 45 through a communicating passage 145. Meanwhile, the raw gas consisting of gaseous hydrocarbons such as natural gas, etc., and steam, is supplied to the inner passage 21 from a supply pipe 20 through the upper space 50 of a furnace body, and catalytically converted to H<sub>2</sub> and CO while being sent upward in the outer passage 22.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## ⑫ 公開特許公報(A) 平1-264904

⑤ Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成1年(1989)10月23日

C 01 B 3/38

8518-4G

C 10 G 35/04

6958-4H

// H 01 M 8/06

R-7623-5H 審査請求 未請求 請求項の数 2 (全6頁)

⑭ 発明の名称 炭化水素の改質装置

⑰ 特 願 昭63-94084

⑱ 出 願 昭63(1988)4月15日

⑲ 発 明 者 井 本 善 章 兵庫県高砂市西畑3丁目4番8号

⑳ 出 願 人 株式会社神戸製鋼所 兵庫県神戸市中央区脇浜町1丁目3番18号

㉑ 代 理 人 弁理士 小谷 悦司 外2名

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

炭化水素の改質装置

## 2. 特許請求の範囲

1. 触媒の充填された反応管と、燃焼ガス誘導路と、燃焼ガスを供給する給熱手段とを有し、上記反応管は同軸に配置した複数の筒状体の間に環状の内層通路と外層通路とが形成されるとともに、これらの通路がその一端部で互いに連通するように形成され、上記燃焼ガス誘導路は2つの誘導路によって構成され、一方の誘導路は上記給熱手段から供給される燃焼ガスが上記内層通路の内周面と外層通路の外周面とに沿って誘導されるように形成され、他方の誘導路は上記燃焼ガスが上記内層通路の外周面と外層通路の内周面とに沿って誘導されるように形成されていることを特徴とする炭化水素の改質装置。

2. 触媒の充填された反応管と、燃焼ガス誘導路と、燃焼ガスを供給する給熱手段とを有し、上記反応管は同軸に配置した複数の筒状体の間に環

状の内層通路と外層通路とが形成されるとともに、これらの通路がその一端部で互いに連通するように形成され、上記燃焼ガス誘導路は2つの誘導路によって構成され、一方の誘導路は上記給熱手段から供給される燃焼ガスが上記内層通路の内周面と外層通路の外周面とに沿って誘導されるように形成され、他方の誘導路は上記燃焼ガスが上記内層通路の外周面と外層通路の内周面とに沿って誘導されるように形成され、原料ガスが上記内層通路の他端部に供給され、この原料ガスと燃焼ガスとが互いに並行して流れるように構成されていることを特徴とする炭化水素の改質装置。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

この発明は、例えば燃料電池用の水素を、炭化水素のスチームリフォーミングにより製造するための炭化水素の改質装置に関するものである。

(従来の技術)

従来、炭化水素の改質装置としては、例えば特開昭59-102801号公報で提案されている

ものが知られている。これは、3重管構造により互いに連通する内層通路および外層通路が形成された反応管と、この反応管の外側方に配置した燃料供給管と、上記反応管の中心部に形成された燃焼排ガス排出路とからなり、内層通路から外層通路に通される原料ガスと、上記反応管の外周面側から内周面側に通されて排出路から排出される燃焼ガスとが互いに対向流となるように構成されたものである。そして上記原料ガスは反応管を通過する間に燃焼ガスから給熱されて改質ガスに改質される。

(発明が解決しようとする課題)

上記従来の炭化水素の改質装置では、内層通路に対する燃焼ガスからの伝熱は反応管の内周面から、また外層通路に対する燃焼ガスからの伝熱は反応管の外周面からそれぞれ行われ、いずれの通路においても片面からだけの給熱により触媒反応が行なわれている。

このため燃焼ガスの熱を十分に活用しているとはいえず、また上記給熱量と対応させて触媒量は

うに形成した。

また請求項2では触媒の充填された反応管と、燃焼ガス誘導路と、燃焼ガスを供給する給熱手段とを有し、上記反応管は同軸に配置した複数の筒状体の間に環状の内層通路と外層通路とが形成されるとともに、これらの通路がその一端部で互いに連通するように形成され、上記燃焼ガス誘導路は2つの誘導路によって構成され、一方の誘導路は上記給熱手段から供給される燃焼ガスが上記内層通路の内周面と外層通路の外周面とに沿って誘導されるように形成され、他方の誘導路は上記燃焼ガスが上記内層通路の外周面と外層通路の内周面とに沿って誘導されるように形成され、原料ガスが上記内層通路の他端部に供給され、この原料ガスと燃焼ガスとが互いに並行して流れるように構成した。

(作用)

上記請求項1の構成によれば、反応管の内層通路と外層通路とはその内周面および外周面の両面が燃焼ガスの誘導路と接しているの、上記通路

決められるので、反応管の容積も比較的大きいものとなっている。

この発明は、このような従来の問題を解決するためになされたものであり、燃焼ガスの熱を十分に活用することができるとともに、従来よりもコンパクトにすることができる炭化水素の改質装置を提供することを目的としている。

(課題を解決するための手段)

上記目的を達成するために、この発明では触媒の充填された反応管と、燃焼ガス誘導路と、燃焼ガスを供給する給熱手段とを有し、上記反応管は同軸に配置した複数の筒状体の間に環状の内層通路と外層通路とが形成されるとともに、これらの通路がその一端部で互いに連通するように形成され、上記燃焼ガス誘導路は2つの誘導路によって構成され、一方の誘導路は上記給熱手段から供給される燃焼ガスが上記内層通路の内周面と外層通路の外周面とに沿って誘導されるように形成され、他方の誘導路は上記燃焼ガスが上記内層通路の外周面と外層通路の内周面とに沿って誘導されるよ

内の触媒層はこの通路の両面側から伝熱を受ける。このため従来の片面側からだけ伝熱を受ける場合に比べてその伝熱面積はほぼ2倍となり、それに対応して吸熱量が増える。これにより触媒量を低減することができるので反応管の容積も小さくでき、この結果装置全体をコンパクトにすることができる。

請求項2の構成によれば、燃焼ガスと原料ガスとが互いに並行流となるために、高温部の燃焼ガスとこの燃焼ガスにより給熱される入口部の原料ガスとの温度差が比較的大きくなり、このため高温部の燃焼ガスから比較的大きい伝熱を得ることができる。

(実施例)

第1図において、改質装置は反応管1と、燃焼バーナー(給熱手段)3と、燃焼ガスの誘導路4と、炉体5とから基本構成されている。

反応管1は、互いに異なる径を有する5つの筒体11、12、13、14、15を同軸に配置することにより、燃焼ガスの誘導路4と一体的に形

成されている。最も内側の第1の筒11と第2の筒12との間に環状の内層通路21、第4の筒14と第5の筒15との間に環状の外層通路22がそれぞれ形成され、また第2の筒12と第3の筒13との間に環状の第3の誘導路43、第3の筒13と第4の筒14との間に環状の第4の誘導路44がそれぞれ形成されている。

そして上記内層通路21と外層通路22とがそれぞれの下端部で連通するように、第1の筒11と第5の筒15、および第2の筒12と第4の筒14との下縁間が閉じ<sup>れ</sup>ている。また第3の誘導路43と第4の誘導路44とがそれぞれの下端部で連通するように、第3の筒13の下端は上記閉じられた底部分から所定間隔上方に離れているように形成されている。

第1の筒11と第2の筒12のそれぞれの上端部には、複数の連通路112が第1の筒11の内側と第3の誘導路43とを連通するように放射状に貫通形成され、また同様に第4の筒14と第5の筒15のそれぞれの上端部にも、複数の連通路

上記反応管1は、炉体5に対してその底面52と内側面53とから所定間隔離れた状態で取付けられている。また反応管1の中心部には燃焼バーナー3の円筒状スリーブ31が配置され、このスリーブ31はその外周面と第1の筒11の内周面との間に環状の第1の誘導路41が形成されるように炉体5の底面52を貫通して取付けられている。このスリーブ31の内部には燃焼バーナー3がその先端を上方に向けて設けられ、この燃焼バーナー3に供給された燃料および空気が燃焼されることにより、その燃焼ガスがスリーブ31の内層空間に放出され、この燃焼ガスがスリーブ31の上端部に形成された多数の貫通穴311から第1の誘導路41の上端部に放出されるようにしている。

反応管1の外周面、すなわち第5の筒15の外周面と炉体5の内側面53との間の環状の空間が第2の誘導路42を構成し、この第2の誘導路42と第1の誘導路41とは反応管1の底面と炉体5の底面52との間を介して互いに連通されてい

145が第4の誘導路44と第5の筒15の外側とを連通するように放射状に貫通形成されている。

上記内層通路21と外層通路22との内部空間にはアルミナ-ニッケル系の改質触媒Sが充填され、この内外で一對の通路21、22によって反応管1の高さのほぼ2倍に相当する長さの改質触媒層が形成される。上記内層通路21の上端211は上方に開口され、炉体5の蓋51に貫通配置された原料ガス供給管20から供給される原料ガスが炉体5の上部空間50を介して流れ込むようにされている。また外層通路22の上端221には炉体5の上部空間50に設けられたコイル式熱交換器6の一端61が接続され、この熱交換器6の他端62は改質ガス取出し口63と接続されている。

これによって原料ガス供給管20から供給された原料ガスが内層通路21、外層通路22を通ることによって改質ガスに改質され、この改質ガスが熱交換器6を介して改質ガス取出し口63から取出されるようにしている。

る。

また上記第1から第4の互いに連通した誘導路41、42、43、44の上端面はそれぞれ閉じられ、上記第2の誘導路42の上端部は炉体5に貫通して設けられた燃焼ガス排出管45と連通されている。これによって連続する一方の誘導路が上記第1の誘導路41および第2の誘導路42、また連続する他方の誘導路が上記第3の誘導路と第4の誘導路44とによってそれぞれ構成される。

そして第1から第4までの誘導路41、42、43、44の内部空間には例えばアルミナ製ボールもしくはラシヒリングなどの充填物Bが充填され、これにより燃焼ガスの滞留時間が比較的に長くなるように調整され、伝熱を促進するようにされている。

なお図中Pは断熱材を示している。

上記構成の改質装置においては、燃焼バーナー3に例えばメタンなどの燃料と空気を供給して燃焼させることにより、燃焼ガスが発生する。この燃焼ガスはスリーブ31内を上昇し、貫通穴3

11を通して第1の誘導路41の上端部に放出される。この放出された燃焼ガスはその一部が第1の誘導路41を下降し、その下端部で折返して第2の誘導路42を経て燃焼ガス排出管45から排出される。また上記第1の誘導路41の上端部に放出された燃焼ガスの残部は、連通路112を介して第3の誘導路43に流れて下降し、その下端部で折返して第4の誘導路44を上昇し、連通路145を介して第2の誘導路42の上端部に導かれ、上記燃焼ガス排出管45から排出される。

一方、例えば天然ガスなどのガス状炭化水素および水蒸気などからなる原料ガスが原料ガス供給管20から炉体5の上部空間50を通して内層通路21に供給される。そして上記原料ガスは内層通路21に沿って下降するとともに、その下端で折返して外層通路22を上昇し、これらの通路21、22内の触媒層を通過する間に原料ガスは触媒反応により主として水素と一酸化炭素とからなる改質ガスに改質される。この改質ガスは熱交換器6を通ることにより、上部空間50を通る原料

ガスと熱交換され、これにより改質ガスは所定温度に下げられた状態で改質ガス取出し口63から取出されるとともに、原料ガスは予熱される。

上記燃焼ガスが燃焼バーナー3から燃焼ガス出口管43まで誘導される間に、上記内層通路21の触媒層は第1の誘導路41と第3の誘導路43とを流れる燃焼ガスによって内外側(第1の筒11および第2の筒12)の両周面から、また外層通路22の触媒層は第4の誘導路44と第2の誘導路42とを流れる燃焼ガスによって内外側(第4の筒14および第5の筒15)の両周面から、それぞれ触媒反応に必要な熱を輻射伝熱および充填物Bを介した熱伝導により給熱される。

これによって上記内層通路21および外層通路22内の触媒層の伝熱面積は、従来の片面からの給熱と比べてほぼ2倍となり、これと対応して触媒Sの単位体積当たり吸熱量も増加し、このため必要触媒量を従来より少なくすることができ、装置のコンパクト化に寄与することができる。例えば水素発生量が数千 $\text{Nm}^3/\text{h}$ までの中、小型の

改質装置として第1図に示す1つの反応管1だけでコンパクトに構成することができる。

また上記給熱に際し、誘導路41、42、43、44内の燃焼ガスと、反応管1の内、外層通路21、22内の原料ガスもしくは改質ガスとは伝熱面である第1、第2、第4および第5の筒11、12、14、15を挟んで互いに並行して流れるように構成されているので、燃焼ガスの入口部分、すなわち第1の誘導路41の上端部において、燃焼ガスと原料ガスもしくは改質ガスとの温度差は比較的大きくなる。このため、原料ガスの入口部分である内層通路21の上端211側では上記温度差が大きい分だけ伝熱量が大きく、燃焼バーナー3での燃焼直後の比較的高温の燃焼ガスの熱を有効に利用することができる。

さらに燃焼ガスと原料ガスとが並行流となるようにしているので、上記燃焼ガスの入口部分においては、未だこの燃焼ガスからの給熱を受けていない原料ガスが内層通路上端部211から供給されることにより第1および第2の筒11、12の

壁面が冷却され、これにより反応管1の壁温Wの上昇を比較的低くおさえることができる。したがってこの反応管1の素材として対向流となるように構成する場合に比べて低いグレードのものを使用することができ、コストの低減化を期待することができる。

また通常余分な空間となる反応管1の中心部に燃焼バーナー3が配置されているので、省スペースが図れ、装置全体のコンパクト化に寄与することができる。

なお、誘導路41、42、43、44内に充填された充填物Bの量もしくは種類などを変化させることにより燃焼ガスの滞留時間などを変化させることができ、これにより給熱の度合を調整することができる。したがって上記充填物Bを全く充填しないようにしてもよい。

なお、上記実施例では、燃焼ガスと原料ガスもしくは改質ガスとが並行流となるように構成しているが、これに限らず、同じ装置を用いて第2図に示すようにこれらが対向流となるように運転し

てもよい。

すなわち第2図において、原料ガスは第1図に示す場合とは逆に改質ガス取出し口63から熱交換器6を介して外層通路22の上端221に供給され、このガスが外層通路22を下降してその下端で折返し、内層通路21を上昇することにより改質され、この改質ガスを内層通路上端211から上部空間50を通して原料ガス供給管20から取出すようにすればよい。

この場合においても、反応管1の通路21、22の触媒層はその両周面から給熱されるので、第1図に示す並行流の場合と同様に伝熱面積を増大させることができる。

また第1図に示す実施例では燃焼バーナー3を炉体5の下方から貫通して設けているが、例えば第3図に示すように炉体5の蓋51に上方から貫通して設けるようにしてもよい。第3図において、燃焼バーナー3aのスリーブ31aが反応管1の中心部の上端、すなわち第1の誘導路41の上端部と連通するように設けられ、上記反応管1の中

心部には上端面に耐火層501を有する円筒55が炉体5の底面52上に固定されている。

これによって燃焼バーナー3からの燃焼ガスはスリーブ31a内を下降し、第1の誘導路41の上端部に放出される。そしてこの燃焼ガスが第1の誘導路41と連通路112を介して第3の誘導路43とに流れることにより、第1図に示す装置と同様に内層通路21および外層通路22の触媒層は両面から給熱される。なお、この燃焼ガスと原料ガスもしくは改質ガスとの流れ方向は並行流に限らず、対向流となるようにしてもよい。

なお第1図から第3図に示す改質装置は、その上下の配置を全く逆転しても、同じ効果を得ることができる。

(発明の効果)

この発明の請求項1の炭化水素の改質装置によれば、反応管の内層通路と外層通路との触媒層はこの通路の内外両周面側から伝熱を受ける。このため燃焼ガスの熱を十分に活用することができ、しかも従来の片面側からだけ伝熱を受ける場合に

比べてその伝熱面積はほぼ2倍となり、それに対応して触媒の単位体積当たりの吸熱量を増加させることができる。これにより必要触媒量を低減することができるので反応管の容積も小さくてすみ、この結果装置全体をコンパクトにすることができる。

請求項2の構成によれば、上記請求項1の発明による効果に加え、燃焼ガスと原料ガスとは互いに並行流となるために、高温部の上流側燃焼ガスと、この燃焼ガスにより給熱される入口部の原料ガスとの温度差が比較的大きくなり、この温度差に対応した比較的大きい伝熱を上記高温部の燃焼ガスから得ることができ、この燃焼ガスの熱を有効に利用することができる。

#### 4. 図面の簡単な説明

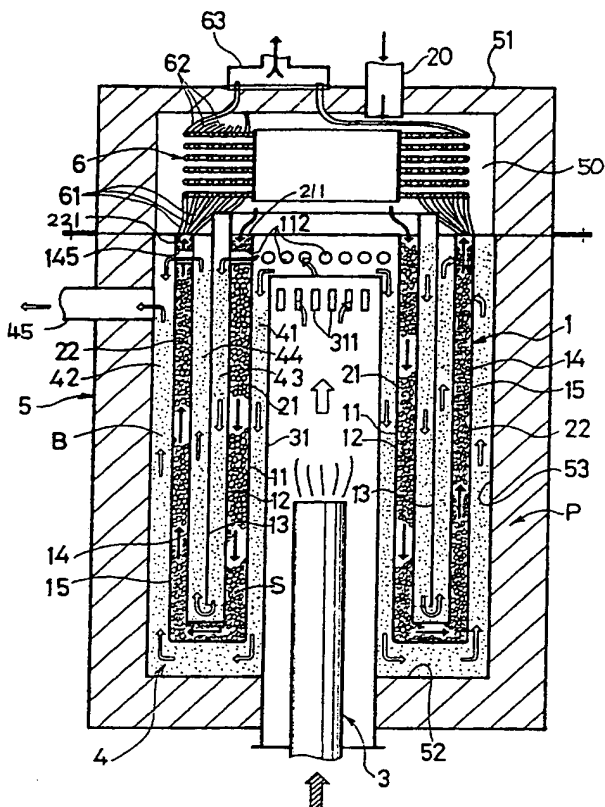
第1図はこの発明の実施例の断面説明図、第2図は第1図の装置における反応管への原料ガスの供給方向を逆にした場合を示す断面説明図、第3図は燃焼バーナーを上部に配置した場合を示す断面説明図である。

1…反応管、3…燃焼バーナー(給熱手段)、4…燃焼ガス誘導路、5…炉体、11…第1の筒、12…第2の筒、13…第3の筒、14…第4の筒、15…第5の筒、21…内層通路、22…外層通路、41…第1の誘導路(一方の誘導路)、42…第2の誘導路(一方の誘導路)、43…第3の誘導路(他方の誘導路)、44…第4の誘導路(他方の誘導路)、S…触媒。

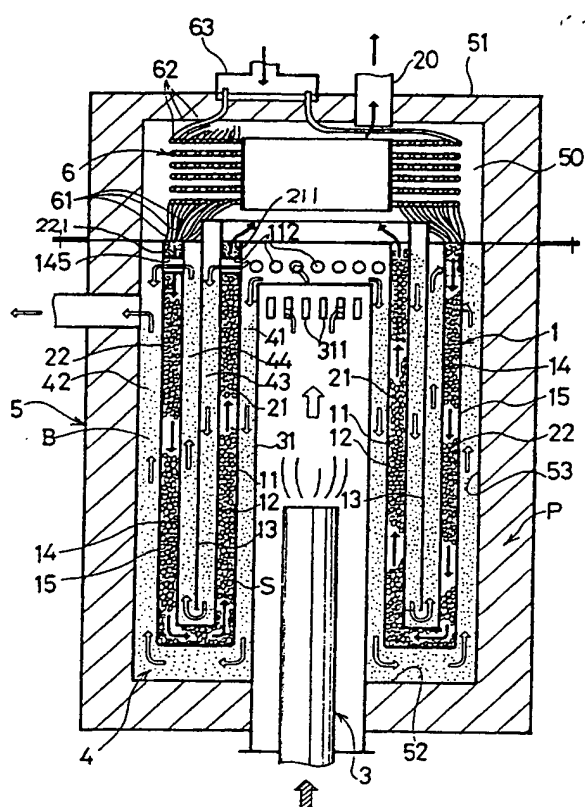
特許出願人  
代 理 人  
同  
同

株式会社神戸製鋼所  
弁理士 小谷悦司  
弁理士 長田 正  
弁理士 伊藤孝夫

第 1 図



第 2 図



第 3 図

